

## MANUFACTURE OF ORGANIC THIN FILM EL ELEMENT

Publication number: JP9007763 (A)

Publication date: 1997-01-10

Inventor(s): IKEZU YUICHI

Applicant(s): NIPPON ELECTRIC CO

Classification:

- International: H05B33/04; C09K11/06; H01L51/50; H05B33/10; H05B33/12; H01L51/52; H05B33/04; C09K11/06; H01L51/50; H05B33/10; H05B33/12; (IPC1-7): H05B33/04; C09K11/06; H05B33/10

- European:

Application number: JP19950153155 19950620

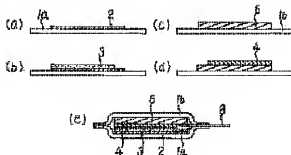
Priority number(s): JP19950153155 19950620

Also published as:

 JP2755216 (B2)

## Abstract of JP 9007763 (A)

**PURPOSE:** To eliminate the unevenness of a metal layer and a failure condition of an organic thin film layer, by laminating and forming a light permeable anode layer and an organic thin film layer on one side of a moisture-proof film, and a cathode layer and the remaining organic thin film layer on the other side, and after that, laminating both layers. **CONSTITUTION:** On a polyester film 1a, an anode layer 2 is formed at a desired pattern, and on the upper surface, an organic hole transport layer 3 is formed thereafter. Then, on another polyester film 1b, a cathode layer 5 is formed, and on the upper surface, a resin distributed organic luminous layer 4 is formed thereafter. After that, the laminated surfaces of both polyester films 1a and 1b are opposed each other, pressurized and laminated. The periphery is fused and sealed together with an external lead 6 by an electric heating sealer.



Data supplied from the esp@cenet database — Worldwide

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平9-7763

(43) 公開日 平成9年(1997)1月10日

(51) Int.Cl. <sup>8</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
H 0 5 B 33/04			H 0 5 B 33/04	
C 0 9 K 11/06		9280-4H	C 0 9 K 11/06	Z
H 0 5 B 33/10			H 0 5 B 33/10	

審査請求 有 請求項の数2 O L (全4頁)

(21) 出願番号 特願平7-153155

(22) 出願日 平成7年(1995)6月20日

(71) 出願人 000004237

日本電気株式会社

東京都港区芝五丁目7番1号

(72) 発明者 池津 勇一

東京都港区芝五丁目7番1号 日本電気株式会社内

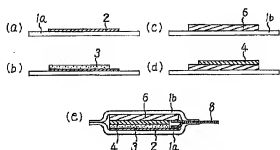
(74) 代理人 弁理士 京本 直樹 (外2名)

## (54) 【発明の名称】 有機薄膜EL素子の製造方法

## (57) 【要約】

【目的】有機薄膜層を形成した後に金属層を形成する工程を排除し、この工程に起因する成膜性の低下を防止する。

【構成】一方のフィルム上に陽極層と有機薄膜層を順に積層して形成し、他方のフィルム上に陰極層と有機薄膜層を順に積層して貼り合わせる。貼り合わせ界面の有機薄膜層は樹脂分散膜とし、樹脂バインダーが軟化する温度下で圧着して張り合わせる。



1a 第1ガラスフィルム  
 1b 第2ガラスフィルム  
 2 陽極層 (ITO)  
 3 有機正孔輸送層

4 有機発光層 (樹脂分散型)  
 5 陰極層  
 6 外部リード

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】 陽極層と $n$  ( $n \geq 1$ ) 層からなる有機薄膜層を陽極層と陰極層の間に配置した積層薄膜を防護フィルムで挟持してなる有機薄膜E L素子の製造方法において、一方の防護フィルム上に透光性の陽極層と前記 $n$ 層からなる有機薄膜層のうちの $m$  ( $m \geq 0$ ) 層を順に積層させて形成し、他方の防護フィルム上に陰極層と残りの $n-m$ 層からなる有機薄膜層を順に積層させて形成した後、双方の積層膜を対向させて貼り合わせ、周辺部を接着または融着封止することを特徴とする有機薄膜E L素子の製造方法。

【請求項2】 前記防護フィルム上に積層する有機薄膜層のうち、貼り合わせ界面となる有機薄膜層は、有機材を樹脂バインダーに分散させた樹脂分散膜とし、この樹脂バインダーが硬化する温度下で圧着して貼り合わせることと特徴とする請求項1記載の有機薄膜E L素子の製造方法。

## 【発明の詳細な説明】

【0001】

【産業上の利用分野】 本発明は、有機薄膜のE L (エレクトロルミネッセンス) 現象を利用した発光デバイスの製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】 ある種の有機薄膜を電極で挟み込み通電すると、双方の電極から注入された正孔および電子が有機薄膜内で再結合し、このときのエネルギーにより発光現象が生じることが知られている。この現象を利用したものは有機薄膜E L素子と呼ばれ各種発光デバイスへの応用が期待されている。E L現象は単層の有機薄膜を電極でサンドイッチした構造でも得られるが、より低い電圧印加で高輝度を得るためには電極から有機発光膜へのキャリアの注入効率を向上させる必要があるため、電極と有機発光層とのエネルギー障壁を低く、有機発光膜へのキャリア移動を容易にすることを目的として、電極と有機発光層との間にキャリア注入層もしくはキャリア輸送層を付加した積層構造が提案されている。

【0003】 例としては、陽極/有機正孔輸送層/有機発光層/陰極 (特開昭57-51781)、陽極/有機発光層/有機電子輸送層/陰極 (C. Adachi, T. Tsubota, S. Saito, Appl. Phys. Lett., 55, 1489 (1989))、陽極/複数の有機正孔注入輸送層/有機発光層/複数の有機電子注入輸送層/陰極 (特開平6-314594) などが挙げられる。

【0004】 電極材料としては、光を取り出す都合上、陽極にはインジウム・錐酸化物 (ITO) や金箔などの透光性薄膜が、陰極にはマグネシウム、アルミニウム、インジウムまたはこれらを母材として銀、リチウムなどを適宜ドーピングした薄膜が用いられている (たとえば特開平5-121172)。

【0005】 これらの薄膜積層構造体は、一般に湿気や熱に対する耐久性に乏しいので、光硬化性の樹脂で全面をカバーしガラスなどを貼り付ける (特開平6-338392)、注入口を有するガラス等の容器に入れ液体封止材を封入する (特開平7-11247) などの封止方法が開示されている。また従来から無機E Lの封止方法として用いられているラミネートフィルムで被覆する (特開昭60-14798) 方法も開示されている。

【0006】 これらの有機薄膜E L素子の従来の製造方法は、図3(a)~(f)に示すように、ガラスや樹脂フィルムなどの透光性基板1上に陽極層2として透明電極をスパッタ法や真空蒸着法などによって形成し

(a)、その上に上記したような有機正孔輸送層3、有機発光層4、有機電子輸送層5などを、真空蒸着法、溶液塗布法、L B法、スクリーン印刷法など公知の薄膜形成技術によって順次積層 (b)~(d)、更にその上に陰極層6として金属層を真空蒸着法やスパッタ法などを用いて形成した後 (e)、外部リード8の取り付けと封止 (f) を行っていた。

【0007】

【発明が解決しようとする課題】 この従来の有機E L素子の製造方法では、単一の基板上に陽極層/有機薄膜層/陰極層を順次積層するので、有機薄膜層を形成後に陰極層となる金属層を形成する工程が存在する。ところが、一般に有機薄膜層を均一に形成することは困難であることに加え、経時や温度によっても膜表面の平坦性に変化するで、有機薄膜層を形成した後に金属層を均一に形成するのは更に困難である。また、首尾長く有機薄膜層を均一に形成することができたとしても、次に形成する金属は成膜時エネルギーが高いので有機薄膜層にダメージを与える恐れがある。これらは積層後の膜厚ばらつきやピンホールの発生を招き、発光品位の著しい低下となる。

【0008】

【課題を解決するための手段】 本発明の有機薄膜E L素子の製造方法は、前述した従来の製造方法の欠点である有機薄膜層の形成後に金属層を形成する工程を排除するために、一方の防護フィルム上に透光性の陽極層と $n$  ( $n \geq 1$ ) 層からなる有機薄膜層のうちの $m$  ( $m \geq 0$ ) 層を順に積層させて形成し、他方の防護フィルム上に陰極層と残りの $n-m$ 層からなる有機薄膜層を順に積層させて形成した後、双方の積層膜を対向させて貼り合わせ、周辺部を接着または融着封止するようにした (請求項1)。

【0009】 また、貼り合わせ面の密着性を向上させるため、上記防護フィルム上に積層する有機薄膜層のうち、貼り合わせ界面と有機薄膜層は、有機材を樹脂バインダーに分散させた樹脂分散膜とし、この樹脂バインダーが硬化する温度下で圧着して貼り合わせるようにした (請求項2)。

【0010】

【実施例】次に本発明の実施例について図面を参照して説明する。図1(a)～(e)は本発明の有機薄膜EL素子の製造方法の第1の実施例を示す工程図である。厚さ100 $\mu$ mの透明ポリエステルフィルム1a上に陽極層としてITO2をスパッタ法にて形成し、フォトリソグラフィ法を用いて所望のパターンとし(a)、続いて有機正孔輸送層3として1,1-ビス(4-ジバトリルアミノフェニル)シクロヘキサンを真空蒸着法により500オングストローム形成した(b)。

【0011】次に他方のポリエステルフィルム1b上に、まず陰極層6としてアルミニウムとリチウムを速度比約7:1で、所望のパターンのシャドウマスクを用いて共蒸着法により2000オングストローム形成し(c)、続いて有機発光材としてトリス(8-キノリノール)アルミニウム、樹脂バインダーとしてフレイク上のポリスチレン樹脂を重量比1:2でジクロロメタンに溶解して2重量%の溶液を作り、ディップコート法により樹脂分散型有機発光層4を700オングストローム形成した(d)。

【0012】その後双方の積層膜を対向させ、ポリスチレン樹脂の軟化点である90℃で加圧して貼り合わせ、周辺部は外部リードと共に電熱シヤーにて融着封止した(e)。完成した有機薄膜EL素子は印加電圧10Vで輝度310cd/m<sup>2</sup>の緑色発光を得た。

【0013】第2の実施例を図2(a)～(e)に示す。厚さ100 $\mu$ mの透明ポリエステルフィルム1a上には陽極層としてパターンニングしたITO2のみを形成した(a)。次に他方のポリエステルフィルム1b上に、まず陰極層6としてアルミニウムとリチウムを速度比約7:1で、所望のパターンのシャドウマスクを用いて共蒸着法により2000オングストローム形成し(b)、続いて有機発光層4としてトリス(8-キノリノール)アルミニウムにキナクリドン1mole%ドープしながら共蒸着法により650オングストローム形成した(c)。

【0014】さらに、この上に有機正孔輸送剤として1,1-ビス(4-ジバトリルアミノフェニル)シクロヘキサン、樹脂バインダーとして粉末状のポリ塩化ビニル樹脂を重量比1:1でテトラヒドロフランに溶解して1重量%の溶液を作り、ディップコート法により樹脂分散型有機正孔輸送層3を500オングストローム形成した(d)。その後双方の積層膜を対向させ、ポリ塩化ビニル樹脂の軟化点である80℃で加圧して貼り合わせ、周辺部は外部リードと共に電熱シヤーにて融着封止した(e)。完成した有機薄膜EL素子は印加電圧12Vで輝度340cd/m<sup>2</sup>の緑色発光を得た。

【0015】第1の実施例では、一方の防湿フィルムにはITOと1層の有機正孔輸送層を順に積層し、他方の防湿フィルムには金属層と1層の有機発光層を順に積層

した。

【0016】また、第2の実施例では一方の防湿フィルムにはITOのみを形成し、他方の防湿フィルムに金属層と1層の有機発光層と1層の有機正孔輸送層を順に積層したが、本実施例では使用しなかった電子輸送層を陰極層と有機発光層との間に形成することもできる。

【0017】また、各有機薄膜層は複数層でも良いし、貼り合わせ界面と有機薄膜層を有機材を樹脂バインダーに分散させた樹脂分散膜とするならば、各有機薄膜層をどちらの防湿フィルムに割り振って積層してもよい。

【0018】本実施例は材料を規定するものではなく、陽極層としては金箔など、有機正孔輸送剤としては芳香族3級アミンの他にポリフィリン誘導体など、有機発光剤としては8-ヒドロキシキノリン金属錯体の他に、ブタジエン誘導体、クマリン誘導体、ベンズオキサゾール誘導体、オキサジアゾール誘導体、オキサゾール誘導体、チアジアゾール誘導体、ステリルアミン誘導体、ビスチルベンゼン誘導体、ビスチルアミンピラセン誘導体、ペリノン誘導体、アミノビニル誘導体など、電子輸送剤としてはナフタルイミド誘導体、ペリレンテトラカルボン酸ジイミド誘導体、キナクリドン誘導体など、有機薄膜ELを構成する材料はすべて使用可能である。また、樹脂バインダーとしては、ポリカーボネート、ポリビニルカルボン酸、塩酸ビス重合樹脂、ホルマール樹脂などが使用可能であるが、前記した正孔輸送剤、発光剤、電子輸送剤との相溶性を有し、既に形成した薄膜層を侵さない溶剤を適宜選択する必要がある。

【0019】

【発明の効果】以上説明したように、本発明の有機薄膜EL素子の製造方法は、一方の防湿フィルム上に透光性の陽極層とn(n $\geq$ 1)層からなる有機薄膜層のうちのm(m $\geq$ 0)層を順に積層させて形成し、他方の防湿フィルム上に陰極層と残りのn-m層からなる有機薄膜層を順に積層させて形成した後、双方の積層膜を対向させて貼り合わせ、周辺部を接着または融着封止するようにしたので、有機薄膜層を形成した後に金属層を形成する工程が存在せず、概して不均一な有機薄膜層の成膜状態に影響して金属層も不均一になったり、金属層成膜時のエネルギーによって既に形成した有機薄膜層がダメージを受けることがない。また、防湿フィルム上に積層する有機薄膜層のうち、貼り合わせ界面となる有機薄膜層の少なくとも1層は、有機材を樹脂バインダーに分散させた樹脂分散膜とし、この樹脂バインダーが軟化する温度下で圧着して貼り合わせるようにしたので貼り合わせの密着性も向上し、安定した性能を有した有機薄膜EL素子を提供できる。

【図面の簡単な説明】

【図1】本発明の有機薄膜EL素子の製造方法の第1の実施例を示す工程図。

【図2】本発明の有機薄膜EL素子の製造方法の第2の

実施例を示す工程図。

【図 3】従来の有機薄膜 E L 素子の製造方法を示す工程図。

【符号の説明】

1 a, 1 b ポリエステルフィルム

2 陽極層 (ITO)

\* 3 有機正孔輸送層

4 有機発光層

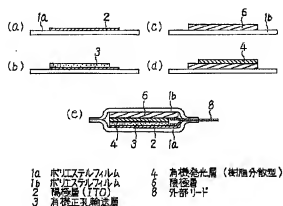
5 有機電子輸送層

6 陰極層

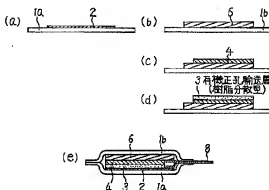
7 樹脂

\* 8 外部リード

【図 1】



【図 2】



【図 3】

